

発信人 日本国特許庁（国際予備審査機関）



出願人代理人

井波 実

殿

PCT

あて名

〒 1-85-002-1

国際予備審査報告の送付の通知書

東京都国分寺市南町2丁目7番17号  
井波特許事務所(法施行規則第57条)  
〔PCT規則71.1〕発送日  
(日.月.年)

19.06.01

出願人又は代理人  
の書類記号

COF-0010

重要な通知

国際出願番号

PCT/JPO0/01370

国際出願日

(日.月.年) 07.03.00

優先日

(日.月.年) 08.03.99

出願人（氏名又は名称）

株式会社先端科学技術インキュベーションセンター

1. 国際予備審査機関は、この国際出願に関して国際予備審査報告及び付属書類が作成されている場合には、それらをこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。
2. 国際予備審査報告及び付属書類が作成されている場合には、すべての選択官庁に通知するために、それらの写しを国際事務局に送付する。
3. 選択官庁から要求があったときは、国際事務局は国際予備審査報告（付属書類を除く）の英語の翻訳文を作成し、それをその選択官庁に送付する。
4. 注 意

出願人は、各選択官庁に対し優先日から30月以内に（官庁によってはもっと遅く）所定の手続（翻訳文の提出及び国内手数料の支払い）をしなければならない（PCT39条（1））（様式PCT/IB/301とともに国際事務局から送付された注を参照）。

国際出願の翻訳文が選択官庁に提出された場合には、その翻訳文は、国際予備審査報告の付属書類の翻訳文を含まなければならない。

この翻訳文を作成し、関係する選択官庁に直接送付するのは出願人の責任である。

選択官庁が適用する期間及び要件の詳細については、PCT出願人の手引き第II巻を参照すること。

名称及びあて名

日本国特許庁（IPEA/JP）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員

特 許 庁 長 官

4 X

2930

電話番号 03-3581-1101 内線 6725

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 注 意

### 1. 文献の写しの請求について

国際予備審査報告に記載された文献であって国際調査報告に記載されていない文献の複写

特許庁にこれらの引用文献の写しを請求することができますが、日本特許情報機構でもこれらの引用文献の複写物を販売しています。日本特許情報機構に引用文献の複写物を請求する場合は下記の点に注意してください。

#### 〔申込方法〕

(1) 特許（実用新案・意匠）公報については、下記の点を明記してください。

○特許・実用新案及び意匠の種類

○出願公告又は出願公開の年次及び番号（又は特許番号、登録番号）

○必要部数

(2) 公報以外の文献の場合は、下記の点に注意してください。

○国際予備審査報告の写しを添付してください。（返却します）。

#### 〔申込み及び照会先〕

〒135-0016 東京都江東区東陽4-1-7 佐藤ビル

財団法人 日本特許情報機構 情報処理部業務課

TEL 03-3508-2313

注) 特許庁に対して文献の写しの請求をすることができる期間は、国際出願日から7年です。

- ### 2. 各選択官庁に対し、国際出願の写し（既に国際事務局から送達されている場合は除く）及びその所定の翻訳文を提出し、国内手数料を支払うことが必要となります。その期限については各国ごとに異なりますので注意してください。（条約第22条、第39条及び第64条(2)(a)(i)参照）

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

特 許 協 力 条 約

P C T

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 COF-0010	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/01370	国際出願日 (日.月.年) 07.03.00	優先日 (日.月.年) 08.03.99
国際特許分類(IPC) Int.Cl <sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10		
出願人(氏名又は名称) 株式会社先端科学技術インキュベーションセンター		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。  <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で 2 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 04.10.00	国際予備審査報告を作成した日 04.06.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員)  原 賢一 電話番号 03-3581-1101 内線 6725	4 X 2930

様式PCT/IPEA/409(表紙)(1998年7月)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

- ☒ 明細書 第 1-10 ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 請求の範囲 第 2, 9 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 4-8, 12-13 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 1, 10 項、 23.02.01 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 図面 第 1-5 ~~ページ~~図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語
3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 3, 11 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (USPTO)



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-2, 4-10, 12-13

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲

1-2, 4-10, 12-13

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-2, 4-10, 12-13

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1、2、4、5、7に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献(JP、2-281567; A(株式会社日立製作所), 19. 1月. 1990(19. 11. 90), 特許請求の範囲、第3頁右上欄第16行-左下欄第19行(ファミリーなし))に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、多孔性基材の細孔に、イオン交換基を持つモノマー由来のグラフトポリマーをその一端が細孔の表面に結合するように充填する電解質膜は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲6に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、多孔性基板の細孔表面にその一端が結合したグラフトポリマーを充填する工程を含む電解質膜を製造する方法は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲8-9に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、電解質が多孔性基材及びその一端が基材の細孔表面に結合するプロトン伝導性を有するポリマーを有する構成は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲10、12、13に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、イオン交換基を持つモノマーをグラフト重合してポリマーを形成してそのポリマーの一端が細孔の表面に結合するように細孔に充填する工程は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

97  
Translation  
09/936/48

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference COF-0010	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/01370	International filing date (day/month/year) 07 March 2000 (07.03.00)	Priority date (day/month/year) 08 March 1999 (08.03.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 8/02, 8/10		
Applicant CENTER FOR ADVANCED SCIENCE AND TECHNOLOGY INCUBATION, LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

RECEIVED  
MAR 20 2002  
TC 1700

Date of submission of the demand 04 October 2000 (04.10.00)	Date of completion of this report 04 June 2001 (04.06.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/01370

## I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-10, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages 2,9, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages 4-8,12-13, filed with the demand  
pages 1,10, filed with the letter of 23 February 2001 (23.02.2001)
- ☒ the drawings:  
pages 1-5, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 3,11
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/01370

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-2,4-10,12-13	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-2,4-10,12-13	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-2,4-10,12-13	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

The subject matters of claims 1, 2, 4, 5 and 7 appear to involve an inventive step in view of the documents cited in the ISR and the document [JP, 2-281567, A (Hitachi, Ltd.), 19 November, 1990 (19.11.90), claims, page 3, upper right column, line 16 to lower left column, line 19 (Family: none)] cited in the previous written opinion.

None of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion describes an electrolytic membrane, in which the pores of a porous base are filled with a graft polymer derived from a monomer having an ion exchange group in such a manner that one end of the polymer is combined with the surfaces of the pores, and there exists no ground for deciding that a person skilled in the art could have easily conceived of this constitution.

The subject matter of claim 6 appears to involve an inventive step in view of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion.

None of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion describes a method of producing an electrolytic membrane comprising the step of filling the pores of a porous base with a graft polymer with its one end combined with the surfaces of the pores, and there exists no ground for deciding that a person skilled in the art could have easily conceived of this constitution.

The subject matters of claims 8 and 9 appear to involve an inventive step in view of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion.

None of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion describes the constitution that an electrolyte has (1) a porous base and (2) a polymer having proton conductivity with its one end combined with the surfaces of the pores of the base, and there exists no ground for deciding that a person skilled in the art could have easily conceived of this constitution.

The subject matters of claims 10, 12 and 13 appear to involve an inventive step in view of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion.

None of the documents cited in the ISR and the document cited in the previous written opinion describes a process of (1) graft-polymerizing a monomer having an ion exchange group, to form a polymer and (2) filling pores with the polymer in such a manner that one end of the polymer is combined with the surfaces of the pores, and there exists no ground for deciding that a person skilled in the art could have easily conceived of this constitution.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## PCT

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 COF-0010	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/01370	国際出願日 (日.月.年) 07.03.00	優先日 (日.月.年) 08.03.99
出願人(氏名又は名称) 株式会社先端科学技術インキュベーションセンター		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。  
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。  
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☐ 出願人が提出したものを承認する。  
☒ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第 2 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。 ☐ なし  
☐ 出願人は図を示さなかった。  
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

本発明は、燃料電池用電解質膜及びその製造方法、並びに燃料電池及びその製造方法に関する。

従来、直接型メタノール固体高分子燃料電池は電解質として固体高分子電解質を用いるが、メタノールが膜を透過してしまい、直接酸化されて起電力が低下する、触媒活性を上げるために温度を上げると摂氏130度付近で膜が融解してしまうという問題点があった。

そこで、本発明は、メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材(1)の細孔(2)にプロトン伝導性を有するポリマー(3)を充填した電解質膜を作製し、メタノールの透過をできるだけ抑制し、かつ高温環境下での使用にも耐える、燃料電池用電解質膜及びその電解質膜を有してなる燃料電池並びにその燃料電池の製造方法を提供するとともに、有機溶媒および水に耐膨潤性を有する多孔性基板にエネルギー照射する工程と当該基板にモノマーを接触させ、重合反応を生じさせる工程を含んでなる電解質膜の製造方法を提供する。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/00-8/24, H01B1/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 7-065624, A (東燃株式会社) 10. 3月. 1995 (10. 03. 95)	1-2, 5
A	全文, 第1図 (ファミリーなし)	4, 8, 9
P	J P, 11-135137, A (旭硝子株式会社) 21. 5月. 1999 (21. 05. 99) 全文, (ファミリーなし)	1-3, 5-6, 8-9, 11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30. 05. 00

国際調査報告の発送日

13.06.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進



4 X 2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3434

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 64-022932, A (東亜燃料工業株式会社) 25. 1月. 1989 (25. 01. 89)	4, 7, 10
Y	全文 (ファミリーなし)	<del>11-13</del>
Y	J P, 3-208260, A (三菱重工業株式会社) 11. 9月. 1991 (11. 09. 91) 全文, 第1図 (ファミリーなし)	12-13
Y	J P, 3-098632, A (東燃石油化学株式会社) 24. 4月. 1991 (24. 04. 91)	11
A	全文, 第1図 (ファミリーなし)	3, 6

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



# INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 00/0163

RECEIVED  
DEC 12 2007  
TC 1700

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C07C51/25 C07C57/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	✓ EP 0 253 409 A (UNION CARBIDE) 20. Januar 1988 (1988-01-20) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele ---	1
A	✓ EP 0 293 224 A (NIPPON SHOKUBAI) 30. November 1988 (1988-11-30) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele ---	1
A	✓ DE 25 13 405 A (BASF) 14. Oktober 1976 (1976-10-14) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiel ---	1
A	✓ EP 0 900 774 A (NIPPON KAYAKU) 10. März 1999 (1999-03-10) Ansprüche; Beispiele ---	1
	--- -/-	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"C" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"G" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Juni 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

30/06/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Wright, M

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL RESEARCHENBERICHT

**nationales Aktenzeichen**

PCT/EP 00/01631

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	✓ EP 0 450 596 A (NIPPON SHOKUBAI) 9. Oktober 1991 (1991-10-09) in der Anmeldung erwähnt <del>Ansprüche; Beispiele</del> -----	1

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONALE RESEARCHERBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/01631

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 253409 A	20-01-1988	AT 69798 T	15-12-1991
		BG 49273 A	16-09-1991
		CA 1299193 A	21-04-1992
		CS 8705443 A	13-12-1989
		DE 3774782 A	09-01-1992
		ES 2026495 T	16-08-1999
		GR 3003795 T	16-03-1993
		GR 3030991 T	31-12-1999
		JP 2519942 B	31-07-1996
		JP 63093747 A	25-04-1988
		MX 169144 B	23-06-1993
		US 5198578 A	30-03-1993
EP 293224 A	30-11-1988	AU 606160 B	31-01-1991
		AU 1678388 A	01-12-1988
		CN 1030228 A,B	11-01-1989
		DE 3874209 A	08-10-1992
		DE 3874209 T	15-04-1993
		JP 1063543 A	09-03-1989
		JP 1957265 C	10-08-1995
		JP 6086399 B	02-11-1994
		KR 9210470 B	28-11-1992
		US 5218146 A	08-06-1993
DE 2513405 A	14-10-1976	KEINE	
EP 900774 A	10-03-1999	JP 10168003 A	23-06-1998
		BR 9707327 A	13-04-1999
		US 6028220 A	22-02-2000
		CN 1210511 A	10-03-1999
		WO 9824746 A	11-06-1998
		PL 328151 A	18-01-1999
EP 450596 A	09-10-1991	AU 640761 B	02-09-1993
		AU 7394091 A	10-10-1991
		BR 9101325 A	26-11-1991
		CA 2039563 A,C	03-10-1991
		CN 1055914 A,B	06-11-1991
		CZ 279457 B	17-05-1995
		DE 69103062 D	01-09-1994
		DE 69103062 T	05-01-1995
		JP 2091856 C	18-09-1996
		JP 4217932 A	07-08-1992
		JP 7084400 B	13-09-1995
		KR 9504027 B	22-04-1995
		US 5198581 A	30-03-1993

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(51) 国際特許分類7 H01M 8/02, 8/10	A1	(11) 国際公開番号 WO00/54351  (43) 国際公開日 2000年9月14日(14.09.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/01370 (22) 国際出願日 2000年3月7日(07.03.00) (30) 優先権データ 特願平11/60817 1999年3月8日(08.03.99) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 株式会社 先端科学技術インキュベーションセンター (CENTER FOR ADVANCED SCIENCE AND TECHNOLOGY INCUBATION, LTD.)[JP/JP] 〒100-0005 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 新丸の内ビルディング Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 山口猛央(YAMAGUCHI, Takeo)[JP/JP] 〒216-0005 神奈川県川崎市宮前区土橋3-15-2 Kanagawa, (JP) 中尾真一(NAKAO, Shinichi)[JP/JP] 〒175-0093 東京都板橋区赤塚新町3-32-5-303 Tokyo, (JP) (74) 代理人 井波 実(INAMI, Minoru) 〒160-0022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 HK新宿ビル7階 太陽国際特許事務所 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)  添付公開書類 国際調査報告書
(54)Title: ELECTROLYTIC MEMBRANE FOR FUEL CELL AND ITS MANUFACTURING METHOD, AND FUEL CELL AND ITS MANUFACTURING METHOD		
(54)発明の名称 燃料電池用電解質膜及びその製造方法、並びに燃料電池及びその製造方法		
(57) Abstract A conventional direct methanol solid polymer fuel cell comprises a solid polymer electrolyte as an electrolyte. This type of cell involves some problems; methanol permeates the membrane; the electromotive force lowers because of direct oxidation; and the membrane melts at about 130 °C when the temperature is increased to enhance the catalyst activity. According to the invention, an electrolytic membrane made of a porous base (1) that does not swell substantially with methanol and water and has pores (2) filled with a polymer (3) having a proton conductivity is produced and used to suppress the permeation of methanol as much as possible, providing an electrolytic membrane for fuel cells endurable in a high-temperature environment, a fuel cell comprising such a membrane, a method of manufacturing such a fuel cell, and a method of manufacturing an electrolytic membrane comprising irradiating a porous base having swell-resistance against organic solvent and water with energy and contacting the base with a monomer to cause polymerization.		

(57)要約

本発明は、燃料電池用電解質膜及びその製造方法、並びに燃料電池及びその製造方法に関する。

従来、直接型メタノール固体高分子燃料電池は電解質として固体高分子電解質を用いるが、メタノールが膜を透過してしまい、直接酸化されて起電力が低下する、触媒活性を上げるために温度を上げると摂氏130度付近で膜が融解してしまうという問題点があった。

そこで、本発明は、メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材(1)の細孔(2)にプロトン伝導性を有するポリマー(3)を充填した電解質膜を作製し、メタノールの透過をできるだけ抑制し、かつ高温環境下での使用にも耐える、燃料電池用電解質膜及びその電解質膜を有してなる燃料電池並びにその燃料電池の製造方法を提供するとともに、有機溶媒および水に耐膨潤性を有する多孔性基板にエネルギー照射する工程と当該基板にモノマーを接触させ、重合反応を生じさせる工程を含んでなる電解質膜の製造方法を提供する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	MN	モンゴル	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MX	メキシコ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MZ	モザンビーク	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NL	オランダ	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NZ	ニュージーランド	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	PL	ポーランド	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	PT	ポルトガル		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮				
DK	デンマーク	KR	韓国				



## 明 細 書

燃料電池用電解質膜及びその製造方法、並びに燃料電池及びその製造方法

## 技術分野

本発明は一般にイオン選択透過膜に関し、さらに詳細には固体高分子電解質燃料電池用電解質膜に関する。

また、本発明は、該電解質膜を有してなる燃料電池及びその製造方法に関する。

## 背景技術

地球的な環境保護の動きが活発化するにつれて、いわゆる温暖化ガスや $\text{NO}_x$ の排出防止が強く叫ばれている。これらのガスの総排出量を削減するために、自動車用の燃料電池システムの実用化が非常に有効と考えられている。

固体高分子型燃料電池 (PEFC, Polymer Electrolyte Fuel Cell) は、低温動作、高出力密度、発電反応で水しか生成されないという優れた特徴を持っている。なかでもメタノール燃料の PEFC は、ガソリンと同様に液体燃料として供給が可能なため、電気自動車用動力として有望であると考えられている。

固体高分子型燃料電池は、改質器を用いてメタノールを水素主成分のガスに変換する改質型と、改質器を使わずにメタノールを直接使用する直接型 (DMFC, Direct Methanol Polymer Fuel Cell) の二つのタイプに区分される。直接型燃料電池は、改質器が不要なため軽量化が可能であり、また頻繁な起動・停止に耐えうる、負荷変動応答性も大幅に改善できる、触媒被毒も問題にならないなどの大きな利点があり、その実用化が期待されている。

しかしながら、DMFCの実用化にはいくつかの問題点が指摘されている。例えば、DMFCは電解質として固体高分子電解質を用いるが、在来の PEFC 用の電解質膜、例えば Du Pont 社の Nafion (商標) 膜、Dow Chemical

社の Dow 膜等を使用した場合には、メタノールが膜を透過してしまい、直接酸化されるため、起電力が低下する、触媒活性を上げるために温度を上げると摂氏 130 度付近で膜が融解（クリーピング）してしまう、という二つの大きな問題が発生する。これらの問題を同時に解決する電解質膜は現在存在しないが、この問題を解決すれば電気自動車への応用が一気に進む可能性がある。

## 発明の開示

よって、本発明の目的は、メタノールの透過（クロスオーバー）をできるだけ抑制し、かつ高温（摂氏約 130 度以上）環境下での使用にも耐える新規な電解質膜を実現することにある。

さらに、本発明の目的は、上記電解質膜の製造方法を提供することにある。

さらに、本発明の目的は、上記電解質膜を用いた新規なメタノール直接型固体高分子燃料電池を実現することにある。

上記問題点を解決するため、鋭意研究を重ねた結果、本発明の発明者らは、有機溶媒および水に対して実質的に膨潤しない耐熱性多孔性基材の細孔に、プロトン伝導性を有するポリマーを充填することにより、上記問題を同時に解決する新規な燃料電池用電解質膜を作成できることを見いだした。

これは、一般にポリマーは高温で軟化するが、熱分解する温度まではその性能を維持するという性質に着目し、耐熱性基材の細孔中にポリマーを化学結合させて埋め込めば、高温下でも基材の骨格が膜の構造を維持するという知見に基づくものである。

さらに、多孔性基材の細孔にポリマーを充填する方法として、多孔性基材の細孔表面をプラズマ、紫外線、電子線、ガンマ線等のエネルギーにより活性化した後、その表面上にイオン交換基を持つモノマーを接触させ、または塗布し、基材表面上および細孔内部においてグラフト重合反応を生じさせ、細孔内部を実質的に重合ポリマーで充填する新規な方法を考案した。

本発明の電解質膜は、有機溶媒及び水に対して実質的に膨潤しない耐熱性

多孔性基材の細孔に、プロトン伝導性を有するポリマーを充填したことを特徴とする電解質膜である。

本発明の電解質膜においては、プロトン伝導性は細孔中に埋め込んだ電解質により確保するとともに、~~高温化における形状維持、膨潤抑制および耐熱性は多孔性基材のマトリックスにより達成する。~~

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、多孔性基材にモノマーをプラズマグラフト重合させる工程を示す部分断面図である。

図 2 は、多孔性基材にモノマーをプラズマグラフト重合させる工程を示す部分断面図である。

図 3 は、実施例の電解質膜（細孔フィリング膜）のメタノール阻止性能を浸透気化法および蒸気通過法の二つの測定方法を用いて測定した結果を示すグラフである。

図 4 は、本発明の電解質膜を用いるメタノール燃料電池の一態様を示す概略図である。

図 5 は、本発明の電解質膜を用いるカソード電極の一態様を示す概略図である。

#### 発明の実施の形態

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の電解質膜は、耐熱性を有し、メタノール等の有機溶媒および水に対して実質的に膨潤しない多孔性材料を基材として用いる。そのような性質を持つ材料としては、無機材料ではガラス、又はアルミナもしくはシリカなどのセラミックス等がある。また、その他の材料ではテフロン（商標）、ポリイミド等がある。これらの材料は、単独で用いても、2 種以上を複合材料として用いてもよい。また、複合材料として用いる場合、その形態は二層以上が積層してなるものであってもよい。

本発明に使用可能な基材の空孔率は、好適には10%から95%である。また、平均孔径は、0.001  $\mu\text{m}$  から100  $\mu\text{m}$  の範囲内にあることが望ましい。さらに、基材の厚さは100マイクロメートル以下、好ましくは数マイクロメートルのオーダーである。

本発明の電解質膜では、多孔性材料からなる基材の少なくとも細孔内表面にイオン交換基を持つモノマーからなるグラフト重合体が形成され、このグラフト重合体を実質的に細孔内を満たした構造を有している。したがって、グラフト重合体の一端が細孔内表面に結合しているため、細孔内に充填した該重合体が容易に流出または溶出することがない。

なお、本明細書において、「イオン交換基」とは、例えば $-\text{SO}_3\text{H}$ 基由来の $-\text{SO}_3^-$ など、プロトンを保持し且つ遊離しやすい基のことをいう。これらがグラフト重合体にペンダント状に存在し、かつ該重合体が細孔内を満たすことにより、プロトン伝導性が生じる。

これらのモノマーのグラフト重合は、例えば、プラズマ、紫外線、電子線、ガンマ線等で基材を励起させて、反応開始点を生成させて、該反応開始点にモノマーを接触させることにより行うことができる。また、シランカップラ一等の化学的方法や、細孔中で重合反応を行わせて、その後に得られた重合体を基材と結合させる一般的な重合法を使用することも可能である。

本発明において、以下に説明するプラズマグラフト重合法を用いることが、特に好ましい。なお、プラズマグラフト重合は、以下に説明する液相法、及び周知の気相重合法を用いて行うことができる。

本発明に使用可能なモノマーとしては、好適にはアクリルスルホン酸ナトリウム (SAS)、メタリルスルホン酸ナトリウム (SMS)、pスチレンスルホン酸ナトリウム (SSS)、アクリル酸 (AA) である。しかしながら、本発明に使用可能なモノマーは、上記に限定されるものではなく、アリルアミン、アリルスルホン酸、アリルホスホン酸、メタリルスルホン酸、メタリルホスホン酸、ビニルスルホン酸、ビニルホスホン酸、スチレンスルホン酸、スチレンホスホン酸、アクリルアミドのスルホン酸またはホスホン酸

誘導体、エチレンイミン、メタクリル酸など、構造中にビニル基およびスルホン酸、ホスホン酸などの強酸基、カルボキシル基などの弱酸基、1級、2級、3級、4級アミンのような強塩基、弱塩基を有するモノマーおよびそのエステルなどの誘導体であつてもよい。

また、これらのモノマーを1種のみ用いてホモポリマーを形成してもよく、2種以上用いてコポリマーを形成してもよい。

電解質膜のプロトン伝導性は、使用するモノマーの種類に依存して変化する。よって、高いプロトン伝導性を持つ材料を用いることが望ましい。

また、電解質のプロトン伝導性は、細孔内を満たすグラフト重合体の重合度にも依存する。細孔内でのグラフト重合体の重合度は、細孔内での該重合体の密度によって表すことができる。本発明において、細孔内でのグラフト重合体は、通常の条件下で得られる重合体の最も高い密度と同じ密度を有することができる。本発明のグラフト重合体の密度は、用いるモノマーにより依存するが、通常の条件下で得られる重合体の最も高い密度を1として標準化した場合、本発明のグラフト重合体は、プロトン伝導性及びメタノール透過性を有するためには、例えばその密度が、標準化値で1.2以下、0.2以上であるのがよい。

本発明の電解質膜の製造に使用可能なプラズマグラフト重合法は、基材にプラズマを照射して、基材表面および細孔内表面に反応開始点を生成させた後に、好適にはモノマーを周知の液相重合の方法により接触させ、モノマーを基材表面および細孔内部においてグラフト重合させる。

つぎに、本発明に使用可能なプラズマグラフト重合法について図面を参照しながら詳しく説明する。プラズマグラフト重合法の詳しい内容については、本発明の発明者らによる先行出願、特開平3-98632、特開平4-334531、特開平5-31343、特開平5-237352、特開平6-246141にも詳しく説明されている。

図1は、本発明の電解質膜に使用可能な多孔性基材1を示した部分断面斜視図である。多孔性基材1には、基材を貫通する細孔2が数多く開いている。

WO 00/54351

多孔性基材 1 に対し、圧力範囲が 1 mPa から 120 kPa となるアルゴン、窒素、空気等のガスの存在下で、通常周波数 10 ~ 50 MHz、出力 1 ~ 1000 W で、1 ~ 1000 秒程度のプラズマ処理を行う。このときプラズマに曝された基材 1 の表面（細孔内表面も含む）には、反応開始点（図示せず）が発生する。

次に、イオン交換基を有するモノマーを水に溶解させ、モノマーの均一溶液を調製する。モノマーの水溶液の濃度は、0.1 から 80 重量パーセントにすることが望ましい。

プラズマ処理後の基材 1 を上記モノマーの水溶液に接触させる。より具体的には、上記の水溶液に、反応開始点が発生している多孔性基材 1 を浸漬する。なお、この工程は摂氏 20 度から 100 度の温度で、窒素ガス等の不活性ガスでバブリングしながら行うのがよい。浸漬する時間は 1 分から一日程度である。

さらに次に、所定の時間経過した多孔性基材 1 を水溶液から引き上げ、トルエンまたはキシレン等の有機溶剤で洗浄し、乾燥させる。これは重合の過程で副次的に生成されたホモポリマーなどを、有機溶剤で完全に洗い流し、基材細孔表面および内部のみにグラフト重合体を残すようにするためである。

図 2 は、基材 1 にモノマーがグラフト重合した状態を概念的に示した斜視図である。グラフト重合した重合体（ポリマー）3 が基材の表面だけではなく、細孔 2 を実質的に充填するように形成されていることがわかる。

以上に記載したプラズマグラフト重合法により、多孔質基材 1 の細孔 2 をグラフト重合体で実質的に充填した電解質膜を作成できる。本発明によるグラフト重合体は、基材の表面に化学的に結合しているため、その膜構造は基材 1 によって支持され、細孔 2 内の重合体が簡単に離脱することはない、また、重合体が熱分解しないかぎり、高温下でも安定である。

本発明の電解質膜は、燃料電池、特に直接型メタノール固体高分子燃料電池又は改質型メタノール固体高分子燃料電池を含むメタノール燃料電池に用いるのが好ましい。本発明の電解質膜は、直接型メタノール固体高分子燃料

電池に用いるのが特に好ましい。

ここで、メタノール燃料電池の構成を、図 4 を参照しつつ、簡単に説明する。

図 4 は、本発明の電解質膜を用いるメタノール燃料電池の一態様を示す概略図である。

メタノール燃料電池 11 は、カソード極 13、アノード極 15、及び該両極に挟まれた電解質 17 を有してなる。メタノール燃料電池は、図示しない改質器をアノード電極側に有し、改質型メタノール燃料電池としてもよい。

カソード極は、従来より公知の構成とすることができ、例えば電解質側から順に触媒層及び該触媒層を支持する支持体層を有してなることができる。

また、アノード電極も、従来より公知の構成とすることができ、例えば電解質側から順に触媒層及び該触媒層を支持する支持体層を有してなることができる。

さらに、本発明の電解質を有してなるメタノール燃料電池は、第 1 の極と電解質とを一体成形して成形体を得た後、第 1 の極とは異なる第 2 の極の触媒層と該電解質側とが密着するように、該成形体と第 2 の極とを密着させて得ることもできる。

第 1 の極がカソード極である場合を、図 5 を用いて説明する。

図 5 は、本発明の電解質膜を用いるカソード極の一態様を示す概略図である。

図 5 中、カソード極 13 は、支持体層 19 上に触媒層 21 を有してなる。

該支持体層 19 は、ガス透過性、特に酸素ガス透過性、耐熱性及び電子導電性を有するものからなるのが好ましい。例えば多孔性カーボンであって電子導電性を有するものであるのがよい。

また、触媒層 21 は、カソード極に所望な、従来より公知の触媒を担持する層である。

この触媒層 21 上に、図 1 に示すような、細孔 2 を有する多孔性薄膜 23 を形成する。多孔性薄膜の形成には、例えば種々のシリコンのアルコキシド、

種々のアルミのアルコキシド、種々のチタンのアルコキシド、又は種々のジルコニウムのアルコキシドなど、種々のガラスまたはセラミックスとなるゾルを調製し、該ゾルを触媒層に塗布する。塗布法は、ディップコーティング、スピンコーティング、スプレーコーティングなど、従来より公知の方法を用いることができる。このようにして塗布されたゾルを乾燥、所望により加温して、多孔性薄膜を得る。なお、得られる多孔性薄膜は、シリカ、アルミナ（例えばγ-アルミナ）、チタニアもしくはジルコニア、又はこれらの混合体もしくは複合体の薄膜であるのがよい。

得られた多孔性薄膜の細孔内に、上述の重合体、例えばグラフト重合法、好ましくはプラズマグラフト重合法により、細孔内表面に該重合体の一端が付着するように、重合体を充填する。これにより、カソード極と電解質とが一体成形することができる。

このような一体成形体を用いることにより、薄膜化した電解質膜のハンドリングが容易になる。

この成形体とアノード極とを、アノード極の触媒層側と成形体の電解質側とが密着するように、密着成形してメタノール燃料電池を形成することができる。

なお、上述において、カソード極と電解質とを一体成形する方法を述べたが、アノード極と電解質とを一体成形することも、当業者であれば、上述から容易に想到することができよう。

## 実施例

本発明を実施例に基づきさらに詳しく説明する。

### 実施例 1

基材として多孔性PTFE膜（商標テフロン、日東電工製、平膜、厚さ70 μm、孔径50 nm）を用いた。当該基材を洗浄し、以下の条件でプラズマ照射を行った。

高周波出力：30 W；



プラズマ照射時間：60秒間；

雰囲気：アルゴンガス；

圧力：10Pa。

プラズマ照射後の基材を、凍結脱気したモノマー溶液に浸漬し、グラフト重合を行った。グラフト重合条件を以下に示す。

モノマー：アクリル酸（AA）；

モノマー濃度：10（重量パーセント）；

溶媒：水；

温度：約60度（摂氏）；

時間：10～24時間。

多孔性基材を溶液から引き上げ、水中で洗浄した後、乾燥させた。乾燥後に膜の質量を測定し、重合前の質量と比較してグラフト重合量を計算した。グラフト重合量は $1.7 \text{ mg/cm}^2$ であった。ちなみに、重合後の膜厚は約 $90 \mu\text{m}$ である。

こうして得られた膜をFT-IR（Mapping法）測定したところ、カルボン酸基の $1740 \text{ cm}^{-1}$ のピークが膜の内部でも存在することが確認され、膜の内部にもポリマーが充填されていることが判明した。

図3は、本実施例（重合量 $1.7 \text{ mg/cm}^2$ のAA膜）の電解質膜（細孔フィリング膜）のメタノール阻止性能を浸透気化法（摂氏25度）および蒸気通過法（摂氏80度から180度）の二つの測定方法を用いて測定した結果を示すグラフである。比較のためNafion（商標）膜についても同様の方法で測定を行った。供給液または蒸気濃度は摂氏25度における水／メタノール＝10／90重量パーセントまたはその平衡蒸気で行った。グラフの横軸は温度（摂氏）を、縦軸は透過流束を示している。

図示されているように、摂氏25度における浸透気化法において、細孔フィリング膜のメタノールフラックスは $0.042 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ と非常に低い値を示しており、同じ温度におけるNafion膜に比べ優れたメタノール透過阻止性能を有していることがわかる。

また、蒸気通過実験では、細孔フィリング膜は摂氏 130 度以上の温度域においてもメタノールの透過流速が増加することはなく、約 180 度まで高いメタノール阻止性能を維持していることがわかる。一方、在来の電解質膜 Nafion (商標) では、摂氏約 130 度からクリープし始め、実験終了後は形状をとどめなかった。

以上の説明より、DMFC 用電解質膜に要求されるメタノールの低透過性、摂氏 130 度以上の耐熱性、良好なプロトン伝導性を併せ持つ電解質膜が提供されたことが理解されよう。

## 請 求 の 範 囲

1. メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材の細孔に、プロトン伝導性を有するポリマーを充填したことを特徴とする電解質膜。
- ~~2. 前記多孔性基材は無機材料または耐熱性ポリマーから構成されることを特徴とする請求項 1 記載の電解質膜。~~
3. 前記プロトン伝導性を有するポリマーがグラフトポリマーであることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の電解質膜。
4. 前記無機材料は、セラミック、ガラスまたはアルミナのいずれか一つもしくはそれらの複合材料であることを特徴とする請求項 2 または 3 記載の電解質膜。
5. 前記耐熱性ポリマーがポリテトラフルオロエチレン又はポリイミドであることを特徴とする請求項 2 または 3 記載の電解質膜。
6. 電解質膜を製造する方法であって、有機溶媒および水に耐膨潤性を有する多孔性基板にエネルギーを照射する工程と、当該基板にモノマーを接触させ、重合反応を生じさせる工程を含んでなる方法。
7. 前記電解質膜を、カソード電極上またはカソード電極の触媒層上に形成したことを特徴とする請求項 1 ～請求項 5 のいずれか 1 項記載の燃料電池。
8. カソード極、アノード極、該両極に挟まれた電解質を有してなる燃料電池であって、該電解質は、メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材及びプロトン伝導性を有するポリマーを有してなり、該ポリマーが該基材の細孔に充填してなる燃料電池。
9. 前記燃料電池が、直接型メタノール固体高分子燃料電池である請求項 8 記載の燃料電池。
10. ゼルを第 1 の極に塗布する工程、塗布したゼルを多孔性薄膜層にする工程、得られた多孔性薄膜層の細孔にポリマーを充填して第 1 の電極上に電解質膜を形成する工程、該電解質膜上に第 2 の極を密着させる工程を有する燃料電池の製造方法。

1 1. 前記電解質膜を形成する工程において、前記ポリマーの一端が前記細孔の表面に結合するように、前記ポリマーをグラフト重合して、該ポリマーを細孔に充填する工程を含む請求項 10 記載の方法。

1 2. 前記第 1 の極が第 1 の支持体層及び第 1 の触媒層を有してなり、ゾル塗布工程において、前記ゾルを前記触媒層に塗布する請求項 10 又は請求項 11 記載の方法。

1 3. 前記第 2 の極が第 2 の支持体層及び第 2 の触媒層を有してなり、第 2 の極を密着させる工程において、前記電解質膜と前記第 2 の触媒層とを密着させる請求項 10～請求項 12 のいずれか 1 項記載の方法。

図 1

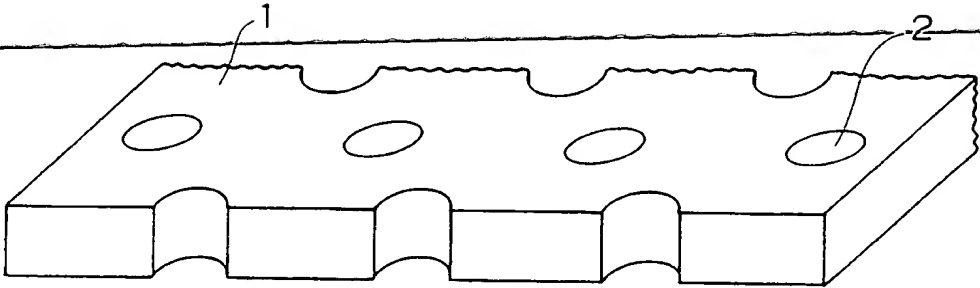


図 2

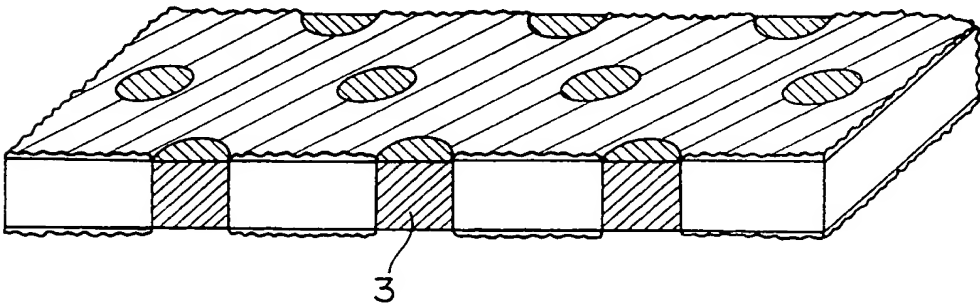




図 3

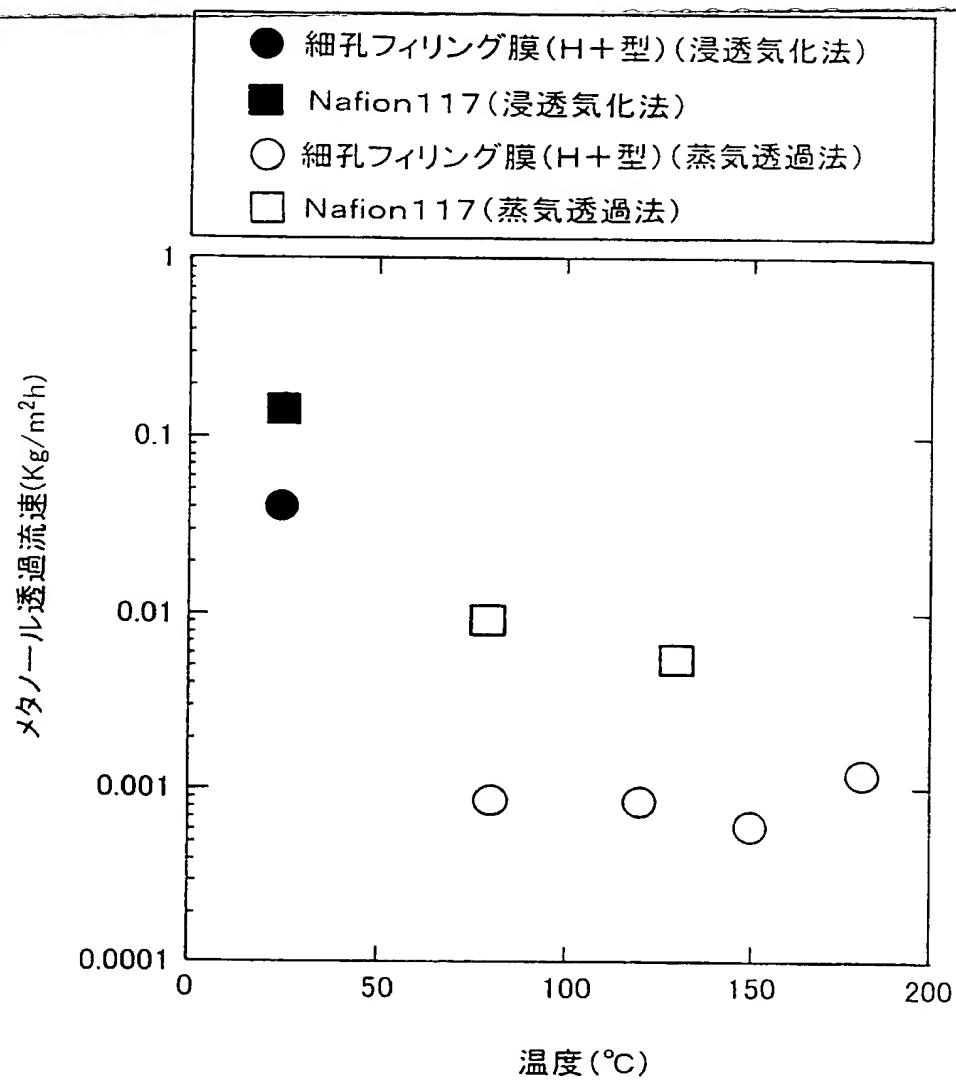






図 4

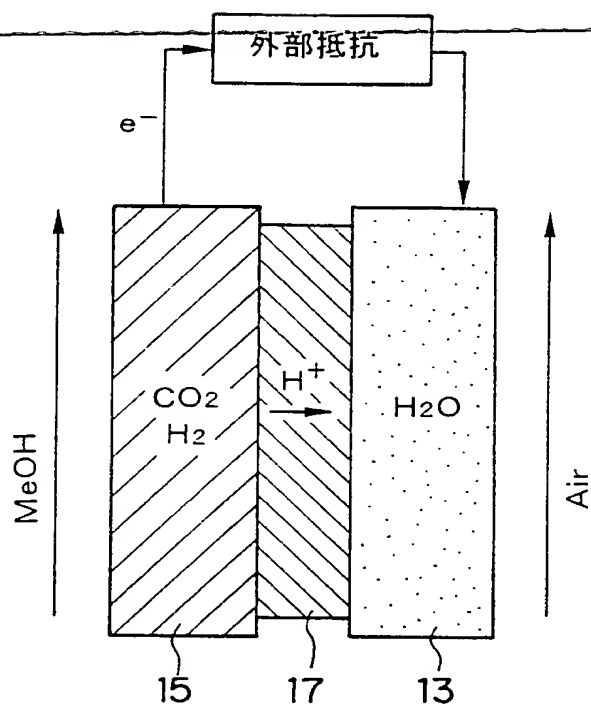
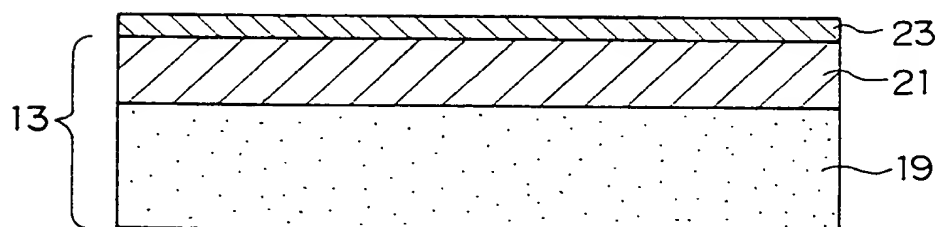


図 5





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01370

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl.<sup>7</sup> H01M8/00-8/24, H01B1/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
JOIS

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP, 7-065624, A (TONEN CORPORATION) 10 March, 1995 (10.03.95) Full text; Fig.1 (Family: none)	1-2, 5 4, 8, 9
P	JP, 11-135137, A (Asahi Glass Co., Ltd.) 21 May, 1999 (21.05.99) Full text (Family: none)	1-3, 5-6, 8-9, 11
X Y	JP, 64-022932, A (Toa Nenryo Kogyo K.K.) 25 January, 1989 (25.01.89) Full text (Family: none)	4, 7, 10 11-13
Y	JP, 3-208260, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.) 11 September, 1991 (11.09.91) Full text; Fig.1 (Family: none)	12-13
Y A	JP, 3-098632, A (TONEN CHEM. CORP.) 24 April, 1991 (24.04.91) Full text; Fig.1 (Family: none)	11 3, 6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
30 May, 2000 (30.05.00)

Date of mailing of the international search report  
13.06.00

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M8/00-8/24, H01B1/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 7-065624, A (東燃株式会社) 10. 3月. 1995 (10. 03. 95)	1-2, 5
A	全文, 第1図 (ファミリーなし)	4, 8, 9
P	J P, 11-135137, A (旭硝子株式会社) 21. 5月. 1999 (21. 05. 99) 全文, (ファミリーなし)	1-3, 5-6, 8-9, 11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30. 05. 00

国際調査報告の発送日

13.06.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4X

2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3434

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 64-022932, A (東亜燃料工業株式会社) 25. 1月. 1989 (25. 01. 89)	4, 7, 10
Y	全文 (ファミリーなし)	11-13
Y	J P, 3-208260, A (三菱重工業株式会社) 11. 9月. 1991 (11. 09. 91) 全文, 第1図 (ファミリーなし)	12-13
Y	J P, 3-098632, A (東燃石油化学株式会社) 24. 4月. 1991 (24. 04. 91)	11
A	全文, 第1図 (ファミリーなし)	3, 6

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)

24 October 2000 (24.10.00)

International application No.

PCT/JP00/01370

Applicant's or agent's file reference

COF-0010

International filing date (day/month/year)

07 March 2000 (07.03.00)

Priority date (day/month/year)

08 March 1999 (08.03.99)

Applicant

YAMAGUCHI, Takeo et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

04 October 2000 (04.10.00)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Maria Kirchner

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)



## PCT INTERNATIONAL COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

INAMI, Minoru  
Inami Patent Firm  
7-17, Minami-cho 2-chome  
Kokubunnji-shi  
Tokyo 185-0021  
JAPON

Date of mailing (day/month/year)

06 November 2000 (06.11.00)

Applicant's or agent's file reference

COF-0010

## IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.

PCT/JP00/01370

International filing date (day/month/year)

07 March 2000 (07.03.00)

## 1. The following indications appeared on record concerning:

☐

the applicant

☐

the inventor

☒

the agent

☐

the common representative

Name and Address

INAMI, Minoru  
Taiyo, Nakajima & Kato  
HK-Shinjuku Building, 7th floor  
3-17, Shinjuku 4-chome  
Shinjuku-ku  
Tokyo 160-0022  
Japan

State of Nationality

State of Residence

Telephone No.

03-3357-5171

Facsimile No.

03-3357-5180

Teleprinter No.

## 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐

the person

☐

the name

☒

the address

☐

the nationality

☐

the residence

Name and Address

INAMI, Minoru  
Inami Patent Firm  
7-17, Minami-cho 2-chome  
Kokubunnji-shi  
Tokyo 185-0021  
Japan

State of Nationality

State of Residence

Telephone No.

03-3357-5171

Facsimile No.

03-3357-5180

Teleprinter No.

## 3. Further observations, if necessary:

## 4. A copy of this notification has been sent to:

☒

the receiving Office

☐

the designated Offices concerned

☐

the International Searching Authority

☒

the elected Offices concerned

☒

the International Preliminary Examining Authority

☐

other:

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Sean Taylor

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

INAMI, Minoru  
Naruse, Inaba & Inami  
Hanabishi Imas Hirakawacho Building  
4th floor  
3-11, Hirakawacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 102-0093  
JAPON

Date of mailing (day/month/year)  
20 March 2001 (20.03.01)

Applicant's or agent's file reference  
COF-0010

International application No.  
PCT/JP00/01370

### IMPORTANT NOTIFICATION

International filing date (day/month/year)  
07 March 2000 (07.03.00)

#### 1. The following indications appeared on record concerning:

☐ the applicant ☐ the inventor ☒ the agent ☐ the common representative

##### Name and Address

INAMI, Minoru  
Inami Patent Firm  
7-17, Minami-cho 2-chome  
Kokubunnji-shi  
Tokyo 185-0021  
Japan

State of Nationality

State of Residence

Telephone No.

03-3357-5171

Facsimile No.

03-3357-5180

Teleprinter No.

#### 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐ the person ☐ the name ☒ the address ☐ the nationality ☐ the residence

##### Name and Address

INAMI, Minoru  
Naruse, Inaba & Inami  
Hanabishi Imas Hirakawacho Building  
4th floor  
3-11, Hirakawacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 102-0093  
Japan

State of Nationality

State of Residence

Telephone No.

03-3512-2871

Facsimile No.

03-3512-2870

Teleprinter No.

#### 3. Further observations, if necessary:

#### 4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office ☐ the designated Offices concerned  
☐ the International Searching Authority ☒ the elected Offices concerned  
☒ the International Preliminary Examining Authority ☐ other:

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Masashi HONDA

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 22 JUN 2001

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 COF-0010	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/01370	国際出願日 (日.月.年) 07.03.00	優先日 (日.月.年) 08.03.99
国際特許分類(IPC) Int.Cl. H01M8/02, H01M8/10		
出願人(氏名又は名称) 株式会社先端科学技術インキュベーションセンター		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。  <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u>2</u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 04.10.00	国際予備審査報告を作成した日 04.06.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員)  原 賢一 印	4X 2930
電話番号 03-3581-1101 内線 6725		

**THIS PAGE BLANK (uspro)**

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

- ☒ 明細書 第 1-10 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 請求の範囲 第 2, 9 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 4-8, 12-13 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 1, 10 項、 23.02.01 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 図面 第 1-5 ~~ページ~~/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 3, 11 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

**THIS PAGE BLANK (user)**



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-2, 4-10, 12-13	有
	請求の範囲		無
進歩性(I S)	請求の範囲	1-2, 4-10, 12-13	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(I A)	請求の範囲	1-2, 4-10, 12-13	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1、2、4、5、7に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献(JP、2-281567, A(株式会社日立製作所), 19. 11月. 1990(19. 11. 90), 特許請求の範囲、第3頁右上欄第16行-左下欄第19行(ファミリーなし))に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、多孔性基材の細孔に、イオン交換基を持つモノマー由来のグラフトポリマーをその一端が細孔の表面に結合するように充填する電解質膜は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲6に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、多孔性基板の細孔表面にその一端が結合したグラフトポリマーを充填する工程を含む電解質膜を製造する方法は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲8-9に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、電解質が多孔性基材及びその一端が基材の細孔表面に結合するプロトン伝導性を有するポリマーを有する構成は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

請求の範囲10、12、13に記載された発明は、国際調査報告および先の見解書で引用した文献に対して進歩性を有する。

国際調査報告および先の見解書で引用されたいずれの文献にも、イオン交換基を持つモノマーをグラフト重合してポリマーを形成してそのポリマーの一端が細孔の表面に結合するように細孔に充填する工程は記載されておらず、その構成を当業者が容易に想到し得たものとする根拠も存在しない。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

請 求 の 範 囲

1. (補正後) メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材の細孔に、プロトン伝導性を有するグラフトポリマーであってその一端が前記細孔の表面に結合するグラフトポリマーを充填したことを特徴とする電解質膜であって、前記グラフトポリマーがイオン交換基を持つモノマー由来である電解質膜。
2. 前記多孔性基材は無機材料または耐熱性ポリマーから構成されることを特徴とする請求項 1 記載の電解質膜。
- 3.
4. 前記無機材料は、セラミック、ガラスまたはアルミナのいずれか一つもしくはそれらの複合材料であることを特徴とする請求項 2 記載の電解質膜。
5. 前記耐熱性ポリマーがポリテトラフルオロエチレン又はポリイミドであることを特徴とする請求項 2 記載の電解質膜。
6. 電解質膜を製造する方法であって、有機溶媒および水に耐膨潤性を有する多孔性基板にエネルギーを照射する工程と、当該基板にモノマーを接触させ、重合反応を生じさせて、前記基板の細孔表面にその一端が結合したグラフトポリマーを充填する工程を含んでなる方法。
7. 請求項 1～請求項 5 のいずれか 1 項記載の電解質膜を、カソード電極上またはカソード電極の触媒層上に形成したことを特徴とする燃料電池。
8. カソード極、アノード極、該両極に挟まれた電解質を有してなる燃料電池であって、該電解質は、メタノールおよび水に対して実質的に膨潤しない多孔性基材及びプロトン伝導性を有するポリマーを有してなり、該ポリマーは、その一端が該基材の細孔表面に結合するように充填してなる燃料電池。
9. 前記燃料電池が、直接型メタノール固体高分子燃料電池である請求項 8 記載の燃料電池。
10. (補正後) ゾルを第 1 の極に塗布する工程、塗布したゾルを多孔性薄膜層にする工程、得られた多孔性薄膜層の細孔にポリマーを充填して第 1 の電極上に電解質膜を形成する工程、該電解質膜上に第 2 の極を密着させる工程を有

**THIS PAGE BLANK (uspto)**

する燃料電池の製造方法であって、前記電解質膜を形成する工程において、前記ポリマーの一端が前記細孔の表面に結合するように、イオン交換基を持つモノマーをグラフト重合して前記ポリマーを形成し且つ該ポリマーを細孔に充填する工程を含む燃料電池の製造方法。

11.

12. 前記第 1 の極が第 1 の支持体層及び第 1 の触媒層を有してなり、ゾル塗布工程において、前記ゾルを前記触媒層に塗布する請求項 10 記載の方法。
13. 前記第 2 の極が第 2 の支持体層及び第 2 の触媒層を有してなり、第 2 の極を密着させる工程において、前記電解質膜と前記第 2 の触媒層とを密着させる請求項 10 又は請求項 12 記載の方法。

THIS PAGE BLANK (USPTO)